

日本国特許庁  
JAPAN PATENT OFFICE

04.10.2004

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日  
Date of Application: 2003年10月15日

出願番号  
Application Number: 特願2003-354940

[ST. 10/C]: [JP2003-354940]

出願人  
Applicant(s): 住友電気工業株式会社

REC'D 26 NOV 2004	
WIPO	PCT

PRIORITY DOCUMENT  
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH  
RULE 17.1(a) OF 17.1(a) OF

2004年11月12日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

八 川

洋

**【書類名】** 特許願  
**【整理番号】** 1031870  
**【提出日】** 平成15年10月15日  
**【あて先】** 特許庁長官殿  
**【国際特許分類】** H01F 1/33  
                   H01F 1/22

**【発明者】**  
**【住所又は居所】** 兵庫県伊丹市昆陽北一丁目1番1号 住友電気工業株式会社 伊丹製作所内  
**【氏名】** 豊田 晴久

**【発明者】**  
**【住所又は居所】** 兵庫県伊丹市昆陽北一丁目1番1号 住友電気工業株式会社 伊丹製作所内  
**【氏名】** 久貝 裕一

**【発明者】**  
**【住所又は居所】** 兵庫県伊丹市昆陽北一丁目1番1号 住友電気工業株式会社 伊丹製作所内  
**【氏名】** 広瀬 和弘

**【発明者】**  
**【住所又は居所】** 兵庫県伊丹市昆陽北一丁目1番1号 住友電気工業株式会社 伊丹製作所内  
**【氏名】** 五十嵐 直人

**【特許出願人】**  
**【識別番号】** 000002130  
**【住所又は居所】** 大阪府大阪市中央区北浜四丁目5番33号  
**【氏名又は名称】** 住友電気工業株式会社

**【代理人】**  
**【識別番号】** 100064746  
**【弁理士】**  
**【氏名又は名称】** 深見 久郎

**【選任した代理人】**  
**【識別番号】** 100085132  
**【弁理士】**  
**【氏名又は名称】** 森田 俊雄

**【選任した代理人】**  
**【識別番号】** 100083703  
**【弁理士】**  
**【氏名又は名称】** 仲村 義平

**【選任した代理人】**  
**【識別番号】** 100096781  
**【弁理士】**  
**【氏名又は名称】** 堀井 豊

**【選任した代理人】**  
**【識別番号】** 100098316  
**【弁理士】**  
**【氏名又は名称】** 野田 久登

## 【選任した代理人】

【識別番号】 100109162

【弁理士】

【氏名又は名称】 酒井 將行

## 【手数料の表示】

【予納台帳番号】 008693

【納付金額】 21,000円

## 【提出物件の目録】

【物件名】 特許請求の範囲 1

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9908053

【書類名】特許請求の範囲

【請求項1】

金属磁性粒子を含み、

前記金属磁性粒子は、X線回折法によって求められる結晶子の平均の大きさが30nm以上である、軟磁性材料。

【請求項2】

前記金属磁性粒子は、結晶粒の平均の大きさが10μm以上である、請求項1に記載の軟磁性材料。

【請求項3】

前記金属磁性粒子と、前記金属磁性粒子の表面を取り囲む絶縁被膜とを含む複数の複合磁性粒子を備える、請求項1または2に記載の軟磁性材料。

【請求項4】

前記複数の複合磁性粒子を互いに接合する有機物をさらに備える、請求項3に記載の軟磁性材料。

【請求項5】

請求項1から4のいずれか1項に記載の軟磁性材料を用いて作製された、圧粉磁心。

【書類名】明細書

【発明の名称】軟磁性材料および圧粉磁心

【技術分野】

【0001】

この発明は、一般的には、軟磁性材料および圧粉磁心に関し、より特定的には、金属磁性粒子を含む軟磁性材料および圧粉磁心に関する。

【背景技術】

【0002】

従来、モーターコアやトランスコアなどの電気電子部品において高密度化および小型化が図られており、より精密な制御を小電力で行えることが求められている。このため、これらの電気電子部品の作製に使用される軟磁性材料であって、特に中高周波領域において優れた磁気的特性を有する軟磁性材料の開発が進められている。

【0003】

このような軟磁性材料に関して、たとえば、特開2002-121601号公報には、透磁率を高くすることを目的とした軟磁性金属粉末粒子が開示されている（特許文献1）。特許文献1に開示された軟磁性金属粉末粒子は、一個の軟磁性金属粉末粒子の切断面において、結晶粒の数が平均で10個以内に設定されている。

【特許文献1】特開2002-121601号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0004】

特許文献1に、軟磁性金属粉末粒子の粒径は $10\text{ }\mu\text{m} \sim 1000\text{ }\mu\text{m}$ が好ましいと記載されているように、用いられる軟磁性金属粉末粒子の粒径は様々である。結晶粒の数を上述のように規定した場合、軟磁性金属粉末粒子の粒径が変化すると、結晶粒の大きさも変化する。またさらに、結晶粒の大きさが変化すると、結晶粒と結晶粒との境界に存在する結晶粒界の単位長さ当たりの数も変化する。つまり、軟磁性金属粉末粒子の粒径が大きければ、単位長さ当たりの結晶粒界の数は減少し、軟磁性金属粉末粒子の粒径が小さければ、単位長さ当たりの結晶粒界の数は増加する。

【0005】

しかし、透磁率は、磁束が結晶粒界を通過することによって低下するため、単位長さ当たりの結晶粒界の数は、透磁率を決定する要因のひとつになっている。このため、粒径によって結晶粒界の数が変化する特許文献1に開示された軟磁性金属粉末粒子によっては、常に所望の磁気的特性を得ることができない。

【0006】

また、透磁率などの磁気的特性は、軟磁性金属粉末粒子の内部に存在する歪み（転位、欠陥）の影響を受ける。このため、光学顕微鏡や走査イオン顕微鏡（Scanning Ion Microscope）により観察される結晶粒を制御するのみでは、所望の磁気的特性を得ることができない。

【0007】

そこでこの発明の目的は、上記の課題を解決することであり、所望の磁気的特性を有する軟磁性材料および圧粉磁心を提供することである。

【課題を解決するための手段】

【0008】

この発明に従った軟磁性材料は、金属磁性粒子を含む。金属磁性粒子は、X線回折法によって求められる結晶子の平均の大きさが $30\text{ nm}$ 以上である。

【0009】

多結晶からなる金属磁性粒子は、結晶粒界を境界として单一領域が規定され、任意の結晶軸に着目したとき、单一領域のどの部分においてもその向きが同じである結晶粒が複数集まって構成されている。また別の観点から、金属磁性粒子は、X線回折法を用いて单一領域が定義され、微結晶の単結晶と見なせる最大の集まりである結晶子が複数集まって構

成されている。結晶子による単一領域は、結晶粒による単一領域よりも狭く、ひとつの結晶粒には複数の結晶子が含まれている。本発明では、この結晶子の平均の大きさが30nm以上である。

#### 【0010】

このように構成された軟磁性材料によれば、金属磁性粒子を構成する結晶子の平均の大きさを30nm以上とすることによって、金属磁性粒子の内部に存在する歪み（転位、欠陥）を低減させることができる。これにより、歪みによる磁壁移動（磁束変化）の妨げが抑制されるため、高い透磁率を有する軟磁性材料を実現することができる。

#### 【0011】

また好ましくは、結晶子の平均の大きさは60nm以上である。さらに好ましくは、結晶子の平均の大きさは80nm以上である。この場合、さらに高い透磁率を有する軟磁性材料を実現することができる。

#### 【0012】

また好ましくは、金属磁性粒子は、結晶粒の平均の大きさが10μm以上である。このように構成された軟磁性材料によれば、単位長さ当たりにおいて、磁束が結晶粒界を通過する回数を少なくすることができる。これにより、さらに高い透磁率を有する軟磁性材料を実現することができる。

#### 【0013】

また好ましくは、軟磁性材料は、金属磁性粒子と、金属磁性粒子の表面を取り囲む絶縁被膜とを含む複数の複合磁性粒子を備える。このように構成された軟磁性材料によれば、絶縁被膜を設けることによって、金属磁性粒子間に渦電流が流れるのを抑制することができる。これにより、渦電流に起因する軟磁性材料の鉄損を低減させることができる。

#### 【0014】

また好ましくは、軟磁性材料は、複数の複合磁性粒子を互いに接合する有機物をさらに備える。このように構成された軟磁性材料によれば、複数の複合磁性粒子の各々の間に介在する有機物は、潤滑剤として機能する。このため、軟磁性材料の加圧成形時において、絶縁被膜が破壊されることを抑制できる。

#### 【0015】

この発明に従った圧粉磁心は、上述のいずれかに記載の軟磁性材料を用いて作製されている。このように構成された圧粉磁心によれば、高い透磁率を実現できるという上述の効果を奏すことができる。高い透磁率の実現により保磁力の低減が可能であり、結果として鉄損（特にヒステリシス損）の低減が達成できることは言うまでもない。

#### 【発明の効果】

#### 【0016】

以上説明したように、この発明に従えば、所望の磁気的特性を有する軟磁性材料および圧粉磁心を提供することができる。

#### 【発明を実施するための最良の形態】

#### 【0017】

この発明の実施の形態について、図面を参照して説明する。

#### 【0018】

図1は、この発明の実施の形態における軟磁性材料を示す模式図である。図1を参照して、軟磁性材料は、金属磁性粒子10と、金属磁性粒子10の表面を取り囲む絶縁被膜20とから構成された複数の複合磁性粒子30を備える。複数の複合磁性粒子30の間には、有機物40が介在している。複数の複合磁性粒子30の各々は、有機物40によって接合されており、複合磁性粒子30が有する凹凸の噛み合わせによって接合されている。

#### 【0019】

金属磁性粒子10は、たとえば、鉄(Fe)、鉄(Fe)－シリコン(Si)系合金、鉄(Fe)－窒素(N)系合金、鉄(Fe)－ニッケル(Ni)系合金、鉄(Fe)－炭素(C)系合金、鉄(Fe)－ホウ素(B)系合金、鉄(Fe)－コバルト(Co)系合金、鉄(Fe)－リン(P)系合金、鉄(Fe)－ニッケル(Ni)－コバルト(Co)

系合金および鉄 (Fe) - アルミニウム (Al) - シリコン (Si) 系合金などから形成することができる。金属磁性粒子10は、金属単体でも合金でもよい。

#### 【0020】

金属磁性粒子10の平均粒径は、5  $\mu\text{m}$ 以上300  $\mu\text{m}$ 以下であることが好ましい。金属磁性粒子10の平均粒径を5  $\mu\text{m}$ 以上にした場合、金属が酸化されにくいため、軟磁性材料の磁気的特性を向上させることができる。また、金属磁性粒子10の平均粒径を300  $\mu\text{m}$ 以下にした場合、後に説明する成形工程時において混合粉末の圧縮性が低下するということはない。これにより、成形工程によって得られる成形体の密度を大きくすることができます。

#### 【0021】

なお、ここで言う平均粒径とは、ふるい法によって測定した粒径のヒストグラム中、粒径の小さいほうからの質量の和が総質量の50%に達する粒子の粒径、つまり50%粒径Dをいう。

#### 【0022】

絶縁被膜20は、金属磁性粒子10をリン酸処理することによって形成されている。また好ましくは、絶縁被膜20は、酸化物を含有する。この酸化物を含有する絶縁被膜20としては、リンと鉄とを含むリン酸鉄の他、リン酸マンガン、リン酸亜鉛、リン酸カルシウム、酸化シリコン、酸化チタン、酸化アルミニウムまたは酸化ジルコニウムなどの酸化物絶縁体を使用することができる。

#### 【0023】

絶縁被膜20は、金属磁性粒子10間の絶縁層として機能する。金属磁性粒子10を絶縁被膜20で覆うことによって、軟磁性材料の電気抵抗率 $\rho$ を大きくすることができる。これにより、金属磁性粒子10間に渦電流が流れるのを抑制して、渦電流に起因する軟磁性材料の鉄損を低減させることができる。

#### 【0024】

絶縁被膜20の厚みは、0.005  $\mu\text{m}$ 以上20  $\mu\text{m}$ 以下であることが好ましい。絶縁被膜20の厚みを0.005  $\mu\text{m}$ 以上とすることによって、渦電流によるエネルギー損失を効果的に抑制することができる。また、絶縁被膜20の厚みを20  $\mu\text{m}$ 以下とすることによって、軟磁性材料に占める絶縁被膜20の割合が大きくなりすぎることがない。このため、軟磁性材料の磁束密度が著しく低下することを防止できる。

#### 【0025】

有機物40としては、熱可塑性ポリイミド、熱可塑性ポリアミド、熱可塑性ポリアミドイミド、ポリフェニレンサルファイド、ポリアミドイミド、ポリエーテルスルホン、ポリエーテルイミドまたはポリエーテルエーテルケトンなどの熱可塑性樹脂や、全芳香族ポリエステルまたは全芳香族ポリイミドなどの非熱可塑性樹脂や、ステアリン酸亜鉛、ステアリン酸リチウム、ステアリン酸カルシウム、パルミチン酸リチウム、パルミチン酸カルシウム、オレイン酸リチウムおよびオレイン酸カルシウムなどの高級脂肪酸を用いることができる。また、これらを互いに混合して用いることもできる。

#### 【0026】

軟磁性材料に対する有機物40の割合は、0を超える1.0質量%以下であることが好ましい。有機物40の割合を1.0質量%以下とすることによって、軟磁性材料に占める金属磁性粒子10の割合を一定以上に確保することができる。これにより、より高い磁束密度の軟磁性材料を得ることができる。

#### 【0027】

図2は、図1中の金属磁性粒子の表面を拡大して示す模式図である。図2を参照して、金属磁性粒子10は、多結晶からなり、複数の結晶粒2が集まって構成されている。結晶粒2の各々の境界には、結晶粒界2-aが延在している。また別の観点から、金属磁性粒子10は、複数の結晶子1が集まって構成されている。結晶子1が規定する単一領域は、結晶粒2が規定する結晶構造上の単一領域よりも狭く、図2では便宜上、結晶粒2のひとつに結晶子1を示している。

## 【0028】

結晶子1の平均の大きさは、30nm以上である。これにより、金属磁性粒子10の内部に存在する歪み（転位、欠陥）を低減させることができる。結晶子1の平均の大きさは、X線回折法を用いて求められる値であり、たとえば次に説明する方法によって求めることができる。

## 【0029】

図3は、金属磁性粒子にX線を照射した場合に得られる回折強度のプロファイルを示すグラフである。図3を参照して、金属磁性粒子10にX線を照射すると、プラグ角 $\theta$ において強度 $\alpha_p$ を有するピークが、プラグ角 $\theta$ を中心とした広がりをもって測定される。このピークの面積から導出される積分強度 $\alpha_N$ を求める。積分強度 $\alpha_N$ をピーク強度 $\alpha_p$ で割り、ピークの積分幅 $\beta_i$ を算出する。

## 【0030】

金属磁性粒子10に照射したX線の波長を $\lambda$ とする場合、プラグ角 $\theta$ 、ピークの積分幅 $\beta_i$ （ラジアン）および波長 $\lambda$ の各値を以下に示すScherrerの式に代入し、結晶子1の平均の大きさ $d$ を求める。

## 【0031】

$$d = \lambda / (\beta_i \cos \theta)$$

なお、Scherrerの式は、 $d$ の値が1nm程度から100nm程度までの範囲の場合に適用することができる。また、Scherrerの式のほか、2本以上のピーク強度を測定することによって結晶子1の平均の大きさ $d$ を求めるHall法などを用いることもできる。

## 【0032】

図2を参照して、結晶粒2の平均の大きさは、10 $\mu$ m以上であることが好ましい。この場合、単位長さ当たりの結晶粒界2aの数を少なくすることができ、高い透磁率を得ることができる。結晶粒2の平均の大きさは、光学顕微鏡や走査イオン顕微鏡を用いて複数の結晶粒2の大きさを測定し、得られた測定値を平均することによって求めることができる。

## 【0033】

この発明の実施の形態における軟磁性材料は、金属磁性粒子10を含む。金属磁性粒子10は、X線回折法によって求められる結晶子1の平均の大きさが30nm以上である。好ましくは、金属磁性粒子10は、結晶粒2の平均の大きさが10 $\mu$ m以上である。

## 【0034】

続いて、図1中に示す軟磁性材料の製造方法について説明する。まず、金属磁性粒子10を準備し、この金属磁性粒子10を熱処理する。このときの熱処理温度は、たとえば100℃以上1000℃以下であり、熱処理時間は、たとえば1時間以上である。その後、金属磁性粒子10の表面に絶縁被膜20を形成することによって、複合磁性粒子30を作製する。

## 【0035】

次に、複合磁性粒子30と有機物40とを混合することによって混合粉末を得る。なお、混合方法に特に制限はなく、たとえばメカニカルアロイング法、振動ボールミル、遊星ボールミル、メカノフェュージョン、共沈法、化学気相蒸着法（CVD法）、物理気相蒸着法（PVD法）、めつき法、スパッタリング法、蒸着法またはゾルゲル法などのいずれを使用することも可能である。

## 【0036】

次に、得られた混合粉末を金型に入れ、たとえば、700MPaから1500MPaまでの圧力で加圧成形する。これにより、混合粉末が圧縮されて成形体が得られる。加圧成形する雰囲気は、不活性ガス雰囲気または減圧雰囲気とすることが好ましい。この場合、大気中の酸素によって混合粉末が酸化されるのを抑制できる。

## 【0037】

加圧成形の際、有機物40は、複合磁性粒子30の間で緩衝材として機能する。これにより、複合磁性粒子30同士の接触によって絶縁被膜20が破壊されることを防ぐ。

## 【0038】

次に、加圧成形によって得られた成形体を、たとえば200℃以上絶縁被膜20の熱分解温度以下で1時間、熱処理する。金属磁性粒子10と成形体とに二度に渡って実施する熱処理によって、金属磁性粒子10の結晶子1の大きさを30nm以上に制御することができる。以上に説明した工程によって、図1中に示す成形体が完成する。

## 【0039】

このように構成された軟磁性材料によれば、金属磁性粒子10の結晶子1の平均の大きさを30nm以上とすることによって、金属磁性粒子10の内部に存在する歪みを低減させることができる。これにより、軟磁性材料の透磁率を向上させることができる。また、金属磁性粒子10の結晶粒2の平均の大きさを10μm以上とすることによって、上述の効果と相乗して、軟磁性材料の透磁率を飛躍的に向上させることができる。

## 【0040】

なお、本実施の形態における軟磁性材料を、チョークコイル、スイッチング電源素子および磁気ヘッドなどの電子部品、各種モータ部品、自動車用ソレノイド、各種磁気センサならびに各種電磁弁などに使用することができる。

## 【実施例】

## 【0041】

以下に説明する実施例によって、本発明による軟磁性材料の評価を行なった。

## 【0042】

実施の形態に記載の製造方法に従って、図1中の軟磁性材料を作製した。この際、金属磁性粒子10として、純度99.8%以上のアトマイズ鉄粉、本実施例では、ヘガネス社製の商品名「ASC100.29」を用いた。所定の温度条件下のもと、この金属磁性粒子10に熱処理を行なった。熱処理は、水素または不活性ガス中で1時間行なった。

## 【0043】

その後、金属磁性粒子10を覆うように絶縁被膜20としてのリン酸塩被膜を形成し、複合磁性粒子30を作製した。本実施例では、有機物40を混合せず、複合磁性粒子30を金型に入れて加圧成形を行なった。加圧圧力を882MPaとした。次に、成形体に温度300℃で1時間の熱処理を行なった。

## 【0044】

金属磁性粒子10に実施する熱処理の温度を100℃以上1000℃以下の範囲で変化させることによって、結晶子1および結晶粒2の大きさが異なる複数の成形体を作製した。なお、結晶子1の平均の大きさは、実施の形態に記載のScherrerの式を用いて求めた。また、結晶粒2の大きさは、ナイタル（硝酸アルコール溶液）を用いて成形体の表面をエッティングし、光学顕微鏡（倍率400倍）によってその表面を観察することによって求めた。

## 【0045】

得られた成形体の透磁率を測定した。結晶子1および結晶粒2の平均の大きさとともに、透磁率の測定値を表1に示した。なお、結晶子1の大きさが100nm以上である複数の成形体に関して透磁率を測定したが、X線の分解能を越えているため結晶子1の大きさを適切に特定することができなかった。そこで、その成形体から得られた透磁率の測定値を平均し、これを表中の結晶子の大きさが110nmの欄に記載した。

## 【0046】

【表1】

結晶粒の大きさ 5(μm)		結晶粒の大きさ 10(μm)		結晶粒の大きさ 20(μm)	
結晶子の大きさ (nm)	透磁率	結晶子の大きさ (nm)	透磁率	結晶子の大きさ (nm)	透磁率
8	100	11	120	9	128
21	98	19	122	18	131
29	121	31	248	31	352
39	157	38	435	40	618
61	223	63	1623	59	1813
77	318	81	2589	79	2751
97	359	95	2757	96	2927
110	384	110	2813	110	3012

## 【0047】

図4は、本実施例において、結晶子の大きさと透磁率との関係を示すグラフである。図4を参照して分かるように、結晶子1の大きさを30nm以上にすることによって、透磁率を向上させることができた。また、このような効果は、結晶粒2の大きさが10μmおよび20μmの場合に顕著に現れ、結晶粒2の大きさが5μmの場合は、限定的にしか現れなかった。

## 【0048】

今回開示された実施の形態および実施例はすべての点で例示であって制限的なものではないと考えられるべきである。本発明の範囲は上記した説明ではなくて特許請求の範囲によって示され、特許請求の範囲と均等の意味および範囲内でのすべての変更が含まれることが意図される。

## 【図面の簡単な説明】

## 【0049】

【図1】この発明の実施の形態における軟磁性材料を示す模式図である。

【図2】図1中の金属磁性粒子の表面を拡大して示す模式図である。

【図3】金属磁性粒子にX線を照射した場合に得られる回折強度のプロファイルを示すグラフである。

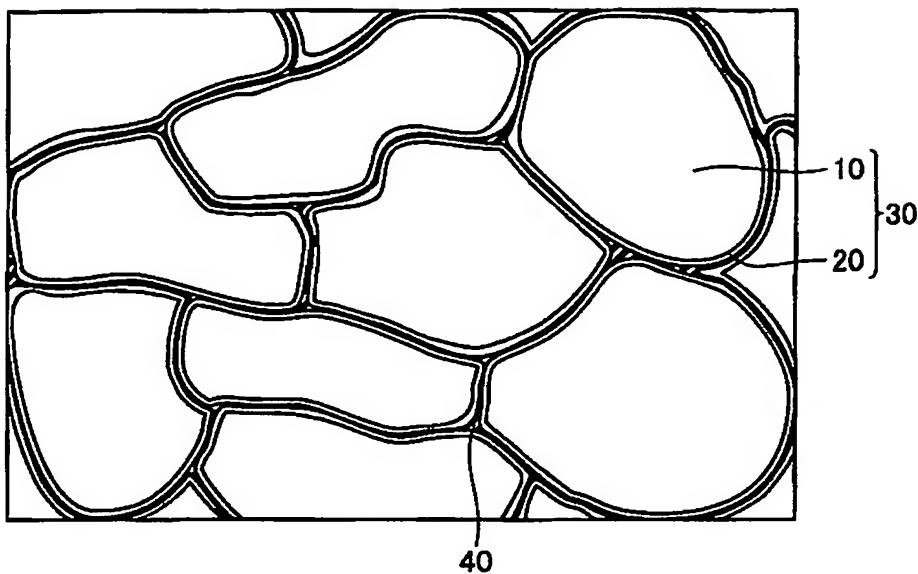
【図4】本実施例において、結晶子の大きさと透磁率との関係を示すグラフである。

## 【符号の説明】

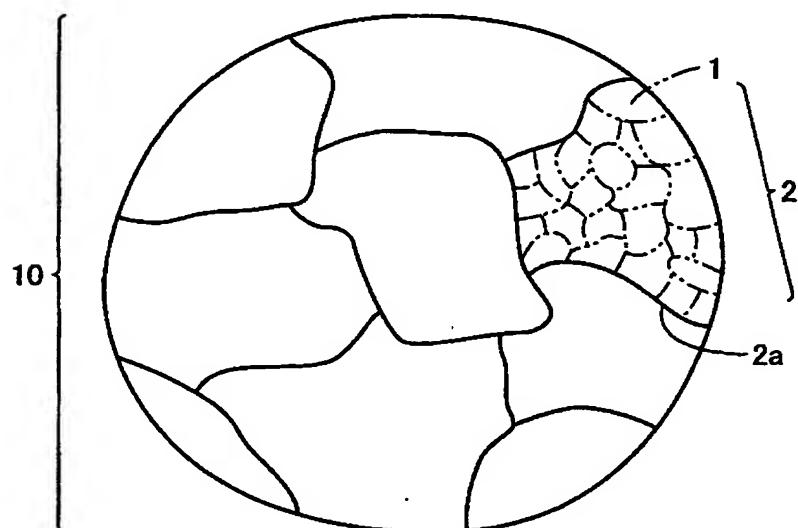
## 【0050】

1 結晶子、2 結晶粒、2a 結晶粒界、10 金属磁性粒子、20 絶縁被膜、30 複合磁性粒子、40 有機物。

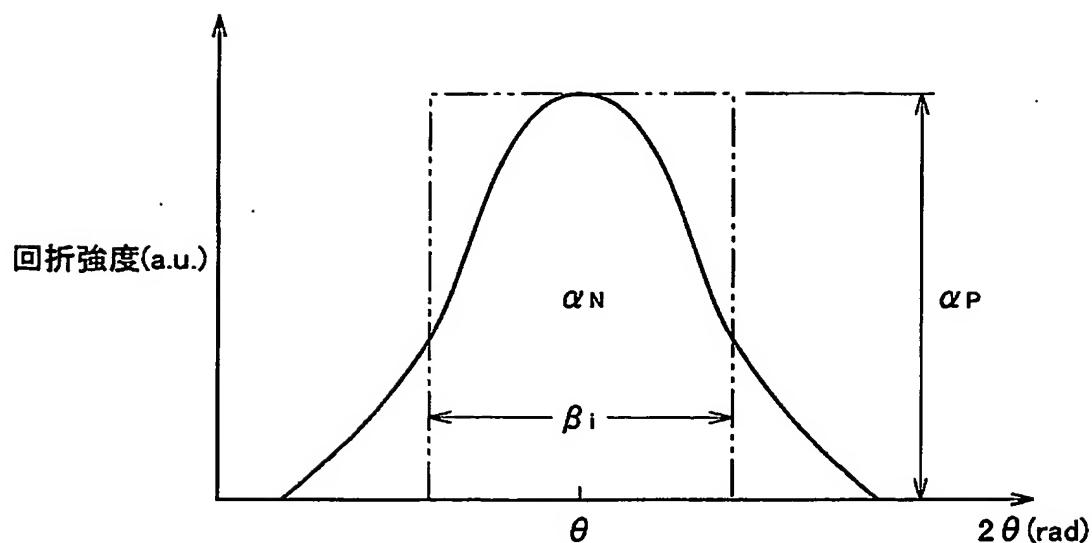
【書類名】 図面  
【図 1】



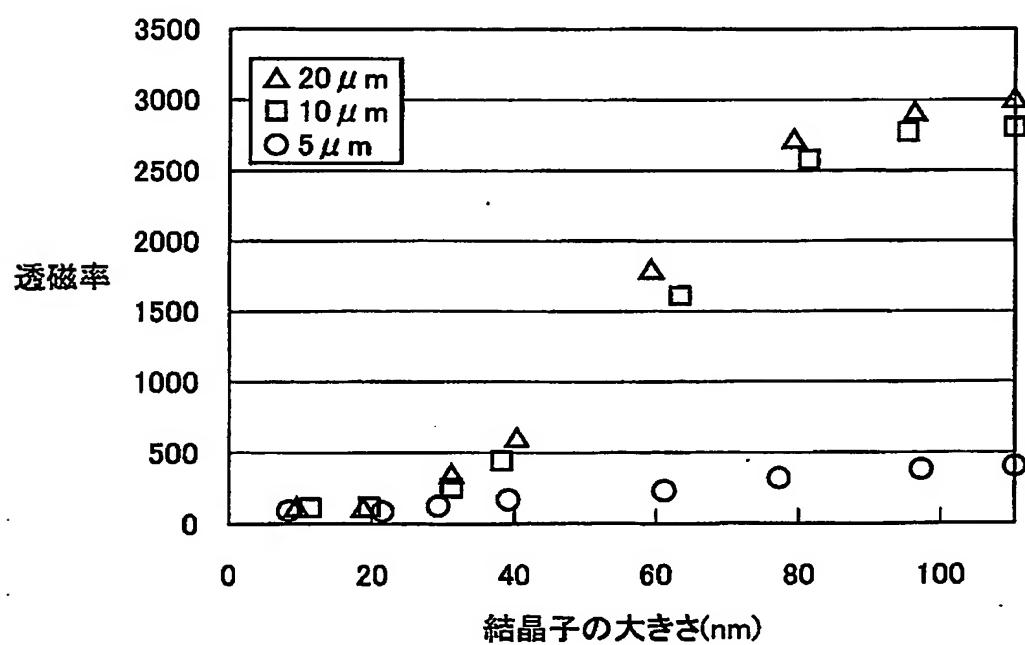
【図 2】



【図3】



【図4】



【書類名】要約書

【要約】

【課題】 所望の磁気的特性を有する軟磁性材料および圧粉磁心を提供する。

【解決手段】 軟磁性材料は、金属磁性粒子10を含む。金属磁性粒子10は、X線回折法によって求められる結晶子1の平均の大きさが30nm以上である。好ましくは、金属磁性粒子10は、結晶粒2の平均の大きさが10μm以上である。

【選択図】 図2

特願 2003-354940

出願人履歴情報

識別番号 [000002130]

1. 変更年月日 1990年 8月29日

[変更理由] 新規登録

住所 大阪府大阪市中央区北浜四丁目5番33号  
氏名 住友電気工業株式会社